

# ELECTRODE STRUCTURE FOR FUEL CELL

Publication number: JP9265992

Publication date: 1997-10-07

Inventor: HIRANO SHINICHI; FUJIKAWA FUTOSHI

Applicant: MAZDA MOTOR

Classification:

- international: H01M4/86; H01M4/92; H01M8/10; H01M4/86;  
H01M4/90; H01M8/10; (IPC1-7): H01M4/86; H01M4/92;  
H01M8/10

- European:

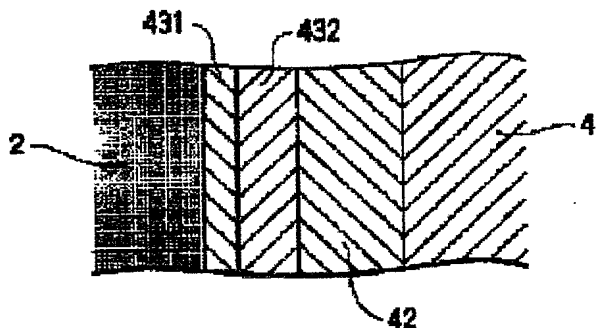
Application number: JP19960077013 19960329

Priority number(s): JP19960077013 19960329

Report a data error here

## Abstract of JP9265992

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide the electrode structure for a fuel cell, which can make a power generation efficiency effective, and is costwise favorable in a solid polymer type fuel cell. **SOLUTION:** As for a second catalyst layer 432, PTFE dispersion solution of 80mg with a weight ratio of 55% is adjusted to the same solution of 79mg by coordinating carbon black carrying platinum with a weight ratio of 20% so as to be mixed with pure water of 40ml and isopropanol of 40ml, so that the mixture is dispersed by the use of an ultrasonic cleaner. As for a first catalyst layer 431, carbon black of 40mg, carrying platinum with a weight ratio of 40%, is mixed with the PTFE dispersion solution of 29mg so as to allow dispersion solution to be regulated. After an anode side pole joining body and a cathode side pole joining body have been formed, let the cathode side pole joining body and the anode side pole joining body be faced to each other in such a way that respective catalyst layer sides are faced to each other, and a solid polymer electrolytic film is interposed between the aforesaid layers so as to be jointed together. They are then fixed using a press jig so as to be formed into a solid polymer electrolytic film pole joining body by hot pressing them using pressure of roughly 25kgf/cm<sup>2</sup> per unit area of the pole joining body at the temperature of around 155 deg.C.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-265992

(43) 公開日 平成9年(1997)10月7日

| (51) Int.Cl. <sup>6</sup> | 識別記号 | 庁内整理番号 | F I     | 技術表示箇所 |
|---------------------------|------|--------|---------|--------|
| H 0 1 M                   | 4/86 |        | H 0 1 M | M      |
|                           | 4/92 |        |         |        |
|                           | 8/10 |        |         |        |

審査請求 未請求 請求項の数6 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平8-77013

(22) 出願日 平成8年(1996)3月29日

(71) 出願人 000003137

マツダ株式会社

広島県安芸郡府中町新地3番1号

(72) 発明者 平野 伸一

広島県安芸郡府中町新地3番1号 マツダ株式会社内

(72) 発明者 藤川 太

広島県安芸郡府中町新地3番1号 マツダ株式会社内

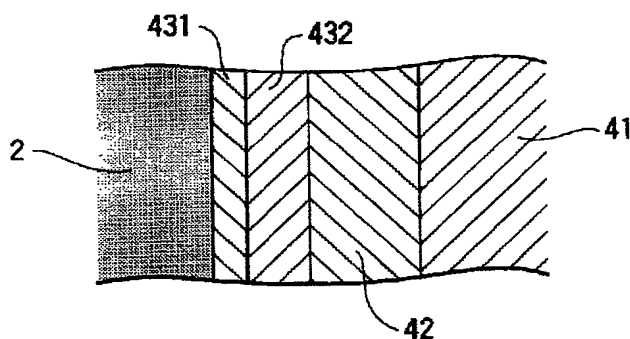
(74) 代理人 弁理士 中村 稔 (外7名)

## (54) 【発明の名称】 燃料電池の電極構造

## (57) 【要約】

【課題】 固体高分子型燃料電池において、発電効率を有効にすることができ、しかもコスト的にも有利な燃料電池の電極構造を提供する。

【解決手段】 第2触媒層432については、重量比20パーセントの白金を担持したカーボンブラックを80mg、重量比55%のPTFE分散溶液 (TEFLON FEP120-J) を79mgとを調製し、これを純水40mlおよびイソプロパノール40mlと混合し超音波洗浄器を用いて分散させた。第1触媒層431については、40%の白金を担持したカーボンブラックを40mgおよびPTFE分散溶液 (TEFLON FEP120-J) 29mgを混合して分散溶液を調製した。アノード側電極接合体およびカソード側電極接合体を構成した後、カソード側電極接合体およびアノード側電極接合体をそれぞれ触媒層側が対面する姿勢で向き合わせ、その間に固体高分子電解質膜を挟んで接合した。そして、プレス治具を用いて固定し、約155℃の温度で電極接合体の単位面積当たり約25kgf/cm<sup>2</sup>の圧力でホットプレスすることにより固体高分子電解質膜電極接合体を製造した。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】電解質膜を有し該電解質膜の両側に配置される触媒電極とを備えた燃料電池の電極構造において、前記触媒電極における触媒物質の密度が、上記電解質膜との界面近傍において極大値を有することを特徴とする燃料電池の電極構造。

【請求項 2】請求項 1 において、前記触媒電極が触媒物質の密度の異なる複数の触媒電極層を積層して構成されていることを特徴とする燃料電池の電極構造。

【請求項 3】請求項 2 において、電解質膜との界面から離れた触媒電極層ほど厚くなっていることを特徴とする燃料電池の電極構造。

【請求項 4】請求項 1 または請求項 2 において、触媒電極のイオン伝導体、触媒物質及び反応ガスとからなる三界相反応領域におけるイオン伝導体の密度を電解質膜との界面近傍において極大値を有することを特徴とする燃料電池の電極構造。

【請求項 5】請求項 1 において、前記触媒物質が白金、または白金合金であって、該触媒物質の密度は、触媒担持体に対して 10～60 重量%の範囲であることを特徴とする燃料電池の電極構造。

【請求項 6】請求項 1 ないし請求項 5 のいずれかにおいて、前記電解質膜が固体高分子電解質膜であることを特徴とする燃料電池の電極構造。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、電解質膜型燃料電池の電極の構造に関する。

## 【0002】

【従来の技術】燃料電池は電解質を介しての酸化還元反応に基づく電力をさまざまな用途に利用しようとするものであって、このために電解質の両側に電極を配し反応ガスを供給するとともに、電力を回収できるように構成している。燃料電池の 1 つの形態として固体高分子型燃料電池が知られている。固体高分子型燃料電池は、一般的に、水素イオン導電性の固体高分子を白金触媒を担持したカーボン電極で挟み込んで構成される発電素子すなわち固体高分子-電極接合体及び反応ガスを供給するためのガス通路溝が設けられ、発電素子を両側から支持するガス分離部材とを積層した構造を有する。そして、一方の電極に燃料ガスを供給し、他方の電極に酸化剤ガスを供給して、燃料ガスと酸素の化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換することによって電気エネルギーを抽出するようになっている。固体高分子型燃料電池において、水素と酸素による電気化学反応が生じると電極間に電流が発生するとともに、カソード側に水が生成する。そして、固体高分子型燃料電池においては、他の燃料電池と比較して動作温度が約 80℃と比較的低温であるために、可搬型の電源、特に電気自動車用のパワーソースに適している。

【0003】しかし、自動車用として用いる場合には、燃料である水素ガスは、可搬型のタンク又は可搬型の改質装置等により自動車で確保する必要がある。一方、酸化剤ガスとしては、システムの軽量化、コスト面等の理由から空気が使用される。この場合、純酸素に比較して酸素分圧が約 1/5 と低下するので、燃料電池の反応の中で酸素還元反応速度及び物質移動の問題が生じる。この問題に対して、一般的には、空気を圧縮して燃料電池に供給する方法が取られる。しかし、この場合、空気圧縮装置を駆動するためのエネルギーを消費するために、その分、燃料電池全体のエネルギー効率低下することに注意すべきである。このような事情に鑑み、低酸素分圧下でも高いエネルギー効率を達成するために、さまざまな手法が提案されている。たとえば、触媒物質（80℃程度の低温状態で活性を有するのは通常は白金触媒である）を微粒化させることによって触媒活性を向上させること、触媒物質密度を増加すること、触媒担持カーボンを増加すること等が提案されている。触媒活性を向上させることによって酸素還元反応速度を改善することができ、したがって燃料電池の性能を改善することができる。

【0004】しかし、上記のような方法で触媒活性を向上させることは酸素還元反応速度を高めることには寄与するものの、物質の移動抵抗を増大させる結果となるという問題がある。また、別の問題として比較的低温状態において触媒活性を有する白金系触媒は高価であるので、その使用量を抑えつつ燃料電池の性能改善を図ることができることがコスト的な観点から望ましい。特開平 7-134993 号公報には、カソード電極側で発生する生成水を効率的に除去することによって燃料電池の性能を向上させるようにした技術が開示されている。上記公報に開示された燃料電池は、固体高分子からなる電解質膜とこの電解質膜の両側に配置した燃料極と空気極とを備えている。そして、上記燃料極と空気極は、電解質膜面に面接して配置された触媒層とその反対側に配置されたガス拡散層を有しており、空気極のガス拡散層には、触媒層側ほど疎水性が高くなるように疎水性の傾斜が設けられ、燃料極のガス拡散層には、触媒層側ほど疎水性が低くなるように疎水性の傾斜が設けられている。この開示された燃料電池においては、上記の構成により燃料極側では、燃料極側電解質の水素イオンとともに移動して減少する水を補充でき、電解質の含水率の低下を抑制できるとともに、空気極側では、触媒層での水のフラジィングによるガス拡散疎外が起りにくくなって電池性能を改善できると記載されている。

## 【0005】

【解決しようとする課題】上記特開平 7-134993 号に開示される燃料電池は、電極のアノード側またはカソード側の水分の供給及び排除を効果的に制御する構造を提供するものであって、いわば物質移動の面から電池

性能を改善しようとするものである。この構成では、1面的には一定の効果を奏することができるものの、上記したような触媒活性及び物質移動の問題の両方の要因を総合的に勘案したものではなく、電池性能改善効果において一定の限界性を有するものである。本発明は、以上のような事情に鑑みて構成されたもので、上記特開平7-34993号公報等に開示される公知のものとは異なる手法によって、性能を改善することができ、しかもコスト的にも有利な燃料電池の電極構造を提供することを目的とする。

#### 【0006】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため、本発明は以下のように構成される。すなわち、本発明は電解質膜を有し該電解質膜の両側に配置される触媒電極とを備えた燃料電池の電極構造において、前記触媒電極における触媒物質の密度が、上記電解質膜との界面近傍において極大値を有することを特徴とする燃料電池の電極構造である。好ましい態様では、前記触媒電極が触媒物質の密度の異なる複数の触媒電極層を積層して構成される。この場合、好ましくは、電解質膜との界面から離れた触媒電極層ほど厚くなるように形成される。また、触媒電極のイオン伝導体、触媒物質及び反応ガスとからなる三界相反応領域におけるイオン伝導体の密度を電解質膜との界面近傍において極大値を有することが好ましい。前記触媒物質は白金、または白金合金であって、該触媒物質の密度は、触媒担持体に対して10～60重量%の範囲であるのが好ましい。触媒物質の含有量が低すぎると、所望の触媒活性を得るとが困難となり、重量比が多すぎる場合には白金量に見合った活性が得られずコスト的に不利となる。発明者らの経験では触媒物質の含有量が担持体に対して約60重量%を越える場合には、良好な触媒分散状態を得ることはできず、性能面での改善が期待できない。また、前記電解質膜は固体高分子電解質膜であることが好ましい。

#### 【0007】

【発明の実施の形態】燃料電池の電極反応は、電解質膜の両側の触媒層の内部で生じ、その反応が活発であるほど燃料電池から取り出すことができるエネルギーは増大する。すなわち、燃料電池の性能は向上する。しかし、上記電極反応によって生じる電流は、触媒層の厚さ方向に一様ではなく、電解質膜の界面に近い位置ほど活発であり、界面から離れるにしたがって、反応活性は低下する。本発明はこのような燃料電池における電極反応現象の実態に着目してなされたものであって、電極反応の最も活発に生じる電解質膜界面近傍の触媒層領域においてより活発な反応を促すように構成するものである。すなわち、触媒層の電解質膜近傍においては、電極反応が促進される環境を作るために触媒物質密度を高めるとともに、これに対応してイオン伝導体密度を高めることによってこの領域での高い反応活性を維持し、かつ電解質膜

界面から離れるにしたがって、両物質の密度を低下させることによって触媒層における物質移動抵抗を極力少なくしている。すなわち、電解質膜から離れるにしたがって、触媒物質密度及びイオン伝導体密度を減少させることによって、物質移動抵抗を低下させることができる。さらに、別の観点において、イオン伝導体密度の減少によってカソード側の電極反応によって発生する水分の拡散性を向上させることができる。

【0008】本発明の上記構成によってアノード側から電解質膜を介して移動してきたプロトンすなわち $H^+$ とアノード電極において集電されて外部仕事をして外部回路を經由してカソード電極に供給される電子とのカソード側における結合を最も効率的に行わせることができるものである。すなわち本発明によって酸化還元反応速度を高く維持することができるとともに、燃料電池の電解質膜及びその両側に配置される触媒層、拡散層を通じての物質移動抵抗を極力低く抑えることができるものである。触媒物質は、代表的には白金または白金合金(Pt/Cr, Pt/Co, Pt/Rh, Pt/Ni)等であり、塩還元法などで導電性と耐腐食性を有するカーボンブラックを担持体として上記触媒物質を担持させたものを使用する。触媒物質密度は触媒物質と担持体との重量比を変化させることによって調節する。また、上記のイオン伝導体としてはスルホン酸基を有するフッ素樹脂などがあげられる。

#### 【0009】

【実施例】以下、本発明の実施例について説明する。

(本発明の実施例にかかる固体高分子電解質膜電極接合体)

#### 全体構造

図1には、本発明の1実施例にかかる単一の固体高分子電解質膜電極接合体からなる燃料電池の断面の概略が示されている。本例の燃料電池1は中央に固体高分子電解質膜2を備えその一方の側に燃料としての水素が供給される酸化電極すなわちアノード電極3、他方の側に還元反応用の酸素源としての空気が供給される還元極すなわちカソード電極4を備える基本構造になっている。アノード電極3は、カーボクロス31、その内側に拡散層32さらにその内側に触媒層33を積層して接合することによって構成されている。そして、アノード電極3の外側には、ガスの分離及び発電した電力の集電機能を有する溝付ガス分離板30が設けられている。そして、アノード電極3と溝付ガス分離板30とでアノード電極側接合体が構成される。

【0010】溝付ガス分離板30は、内部を燃料ガスである水素ガスがプロトン $H^+$ を電解質膜側に供給しつつ流通するアノードガス通路34を画成するための溝を備えている。カーボクロス31の拡散層32との面接触部は、水素分子から発生する電子を集電する集電部を構成する。カソード電極側も同様な構成になっており、カーボクロス41、拡散層42、触媒層43の積層接合

構造を有する。そしてカーボクロス41の外側には溝付ガス分離板40を備えており、酸素ガスが外部に漏れ出ないようにまた、カーボクロス表面を屈曲しつつ延びる溝をガスがショートパスしないように分離を行なう役割をもつ。そして、溝付ガス分離板40は、電解質膜側からのプロトン $H^+$ と接触して水を生成する酸素を流通させるカソードガス通路44を画成する約1mm程度の深さを有する溝を有している。そして、カソード電極4と溝付ガス分離板40とでカソード側電極接合体が構成される。

【0011】上記構成によって図1に概念的に示すようにアノード側から電解質膜2を介して移動してきたプロトンすなわち $H^+$ とアノード電極3において集電されて外部仕事をして外部回路を経由してカソード電極4に供給される電子とのカソード電極側で結合される。すなわちアノード電極側では、水素分子が電子を奪われることによってプロトン $H^+$ が発生し、カソード電極側では、電解質膜2を介して伝導されたプロトン $H^+$ と外部負荷を有する外部回路からの電子とカソードガス通路から供給される酸素分子とが反応して水分子が生成する。カソード電極4の中間の電解質膜2から各電極3、4に至る積層状態の詳細が図2に示されており、電解質膜2の外側には触媒層が第1触媒層431、第2触媒層432の2層が隣接接合状態で設けられている。そして、その外側に拡散層42が設けられ、さらにその外側にカーボクロス41が接合されて電極が構成される。なお、その外側に上記のように溝付ガス分離板40が接合されて全体の接合体が構成される。

#### カーボクロス

カーボクロス31、41は、固体高分子電解質膜電極接合体において、溝付ガス分離板30、40のすぐ内側に配置される電極部分の基層を成す部分であって、基本的に上記のアノード電極反応、カソード電極反応にかかる電子の移動を担う集電部材としての役割を持つ。さらに、各電極3、4における物質移動、特にアノードガス、カソードガスをイオン伝導体、触媒物質及び反応ガスとからなる三界相反応領域に対して効果的に供給することができるようになっており、およびカソード電極4において発生する水分の排出を効果的に行うことができるようになっており、ことが望ましい。

【0012】本例においては、アノード側カーボクロス31およびカソード側カーボクロス41はいずれもカーボン繊維を織って構成されるカーボクロスを用いる。本例において電極として使用されるカーボクロスは米国E-TEK社製の商品名：“A” Clothであり、重量は、 $116\text{ g/m}^2$ 、厚さは、 $0.35\text{ mm}$ である。本例の電極を構成するに当たってフッ素樹脂（ポリテトラフルオロエチレン（以下PTFEという））分散溶液（約 $0.2\text{ }\mu\text{m}$ 程度の粒径のPTFEが54～55重量パーセント含まれており、所定量の界面活性剤と

もに安定分散している（三井・デュポンフロケミカル（株）から商品名TEFLON FEP120-Jとして提供されている）によってカーボクロスの表面処理を行い撥水性を付与した。このカーボクロスの撥水処理は、PTFEを界面活性剤とともに分散させた溶液を49wtパーセントに希釈した溶液中に上記カーボクロスを5分間浸した後濾紙で余分な溶液を拭き取り、その後、窒素雰囲気中の電気炉中で温度 $340^\circ\text{C}$ で1時間PTFEを焼結させた。

#### 10 拡散層

拡散層は、カーボクロスの内側に触媒層と接触するように設けられるものであって、電極と同様に触媒層に対し、および触媒層からの物質移動が効果的に行われるように機能する必要があるとともに、触媒層と電極との間に介在する媒体として集電機能を効果的に発揮するものでなければならない。

【0013】本例では、拡散層は、カーボンブラックとPTFEとの焼結体として構成されている。両者の重量比は、6：4であり、その単位面積当たりの密度は、それぞれ $2.4\text{ mg}$ 、 $1.6\text{ mg}$ である。なお、カーボンブラックとしては、Cabot Corporationから提供されている商標名Vulcan XC-72（表面積 $250\text{ m}^2/\text{g}$ ）を用いた。

#### 拡散層の製造

カーボンブラック $315\text{ mg}$ と上記市販のPTFE分散溶液 $389\text{ mg}$ を $40\text{ ml}$ の純水および $40\text{ ml}$ のイソプロパノールとともに混合し、超音波洗浄器を用いて分散させた。この分散調製液を上記の電極として撥水処理したカーボクロス上にスプレーを用いドライヤーを用いて乾燥させながら吹きつけた。上記分散溶液がカーボクロス上に付着する率は5～30％である。吹きつけ完了後、約 $50\text{ kg}$ のローラーによって拡散層を形成したカーボクロスを約 $0.2\sim 0.5\text{ mm}$ の厚さに圧縮した。次に、上記の窒素雰囲気中の電気炉中で約 $300^\circ\text{C}\sim 350^\circ\text{C}$ で約1時間PTFEを焼結させることによってのカーボクロス上に拡散層を形成した。

#### 【0014】触媒層

（カソード電極側）本例では、カソード電極側の触媒層は2層から構成されており、電解質膜側の第1触媒層は、本例では、ほぼ $10\text{ }\mu\text{m}$ であり、その外側に隣接する拡散層側の第2触媒層は、は $20\text{ }\mu\text{m}$ の厚さに仕上げられている。触媒としては、上記カーボンブラック（Vulcan XC-72）に白金を担持させたものを用いた。しかし、触媒金属である白金の密度は第1触媒層の方が高く白金／カーボン比で第1触媒層は40パーセントPt／C（重量パーセント）、第2触媒層は20パーセントPt／C（重量パーセント）である。なお白金の平均粒径は約 $2.5\text{ nm}$ である。各触媒層の組成は、図3に示す通りである。なお、図3において、Nafionは、デュポン社から提供される電解質膜の商品名ポリマー含有液であ

り、そのポリマーの構造は、図4に示すAciplex-S(1004)と同様のものである。このポリマー含有液Nafionは、水とエタノールを等量混合した溶液中に所定量のポリマーを分散させたものである。本例では、ポリマーの濃度は、5wtパーセントのものを使用している。カソード電極側の触媒層の製造について説明する。触媒層を形成するに当たってまず、所定量の原料を含む分散溶液を調製する。第2触媒層432については、重量比20パーセントの白金を担持したカーボンブラックを160mg、重量比55%のPTFE分散溶液(TEFLON FEP120-J)を158mgとを調製し、これを純水40mlおよびイソプロパノール40mlと混合し超音波洗浄器を用いて分散させた。第1触媒層431については、40%の白金を担持したカーボンブラックを40mgおよびPTFE分散溶液(TEFLON FEP120-J)29mgを混合して分散溶液を調製する。上記PTFE分散溶液中においては約0.2 $\mu$ m程度の粒径のPTFEが54~55重量パーセント含まれており、所定量の界面活性剤とともに安定分散している。

【0015】つぎに、上記で調製した2種類の触媒層用の分散溶液の内、先ず第2触媒層用の分散溶液をスプレーを用いて上記の拡散層を形成した半製品の拡散層の面上に吹きつけて、第2触媒層432を形成した。そして、上記拡散層形成の場合と同様に、窒素雰囲気電気炉中でPTFEのガラス転移温度付近(約300~350℃)でPTFEの焼結処理を約1時間かけて行った。次に同様な要領で、白金密度のやや高い第1触媒層用分散溶液を上記で形成した第2触媒層431の表面にスプレーを用いて吹きつけ、裏側触媒層用の分散溶液を塗布した。次に同様な拡散層、第2触媒層と同様な要領で焼結処理を行って、第2触媒層432の上に第1触媒層431を形成した。次に上記のようにして形成したカーボンクロス41、このカーボンクロス41上の拡散層42、拡散層上の第2、第1各触媒層432、431からなる固体高分子電解質膜電極接合体半製品の第1触媒層431の表面上から上記の高分子電解質溶液Nafionを塗布する。本例では、Nafionを適当なブラシに浸漬してNafionを含ませて第1触媒層431の表面に塗布した。塗布量は約0.6mg/cm<sup>2</sup>であった。

(アノード電極側) 本例のアノード電極側の触媒層は触媒密度を均一とした単一層から構成されている。そして、上記のカーボンブラック(Vulcan XC-72)に白金を担持したもの(20%Pt/C、平均白金粒径2.5nm)を0.4mg/cm<sup>2</sup>となるように触媒層を上記カソード側の触媒層を形成する手法と同じ要領で、分散液の拡散層表面への吹きつけおよびその後のPTFEの焼結処理を行なうことによって形成した。この場合、カーボンブラックの量は、触媒層、拡散層あわせて約4.0mg/cm<sup>2</sup>程度となるように調製した。そして、溝付ガス分離板30を除くアノード側電極接合体全体として

約0.35mm程度とした。

#### 【0016】電解質膜

固体高分子電解質膜は、無孔性の高分子材料であって、フッ素樹脂(ポリテトラフルオロエチレン(以下PTFEという))から構成することができる。本例の電解質膜は、旭化成(株)から提供される商品名: Aciplex-S(1004)である。その厚さは、約2~6mil(約50~150 $\mu$ m)程度である。この化学構造は、図4に示す通りである。上記したように固体高分子型燃料電池における基本的な動作によれば、アノード電極で燃料ガスである水素から電子が奪われる反応が生じ、これによって電子と水素イオン(プロトンH<sup>+</sup>)が発生し、電子は負荷を通り、一方プロトンH<sup>+</sup>は、電解質膜中を伝導してカソード電極に到達する。カソード電極において、プロトンH<sup>+</sup>は、酸素の反応することによって反応水を生成する。すなわち、電解質膜は上記の基本動作から明らかのようにプロトンH<sup>+</sup>をカソード側に伝導する役割を果たすとともに、未反応水素ガスが分子状態でカソード側に進入することを防止する役割を持つものである。なおプロトンH<sup>+</sup>が電解質膜中をカソード側に向かって移動する場合には水分子を伴って移動するので、電解質膜は、このための水分子を保有する水分子保有機能も有していなければならない。また、イオン伝導体基(本例ではスルホン酸基)を有する電解質膜では単位重量当たりのスルホン酸基の重量の比すなわちスルホン酸基当量は、約500~1500(g/eq)でことが好ましい。電解質膜は、(1)プロトンH<sup>+</sup>の伝導機能、

(2)アノードガス通路の水素ガスとカソードガス通路の酸素ガス(空気)とを隔離するためのセパレーション機能、および(3)所定の保水機能を有する必要があるこの条件を満たすものであれば、任意のものを使用することができる。電解質膜のアノード側にはアノード側触媒層、カソード側にはカソード側触媒層が形成される。

#### 【0017】電極接合体の形成

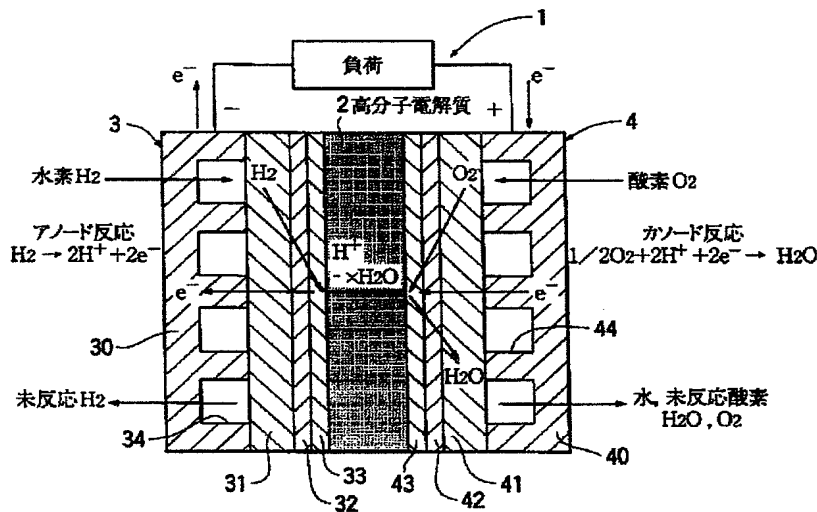
上記のようにしてアノード側電極接合体およびカソード側電極接合体を構成した後、カソード側電極接合体およびアノード側電極接合体をそれぞれ触媒層側が対面する姿勢で向き合わせ、その間に固体高分子電解質膜を挟んで接合した。そして、プレス治具を用いて固定し、約155℃の温度で電極接合体の単位面積当たり約25kgf/cm<sup>2</sup>の圧力でホットプレスすることにより固体高分子電解質膜電極接合体を製造した。

【0018】(比較例にかかる固体高分子電解質膜電極接合体) 比較例の構成では、カソード側電極もアノード側電極と同様に単一の触媒層から構成した。触媒層を形成するために実施例と同様に分散溶液を調製した。この場合、白金担持カーボンブラック(Vulcan XC-72)は白金重量比Pt/C20パーセントを160mg、PTFE分散溶液(FEP120-J)158mgを用いて上記と同様に分散液を調製し、スプレーによる吹きつけによって触

媒層を形成した。なお、吹きつけによる分散液の付着率は吹きつけ量の15～20%である。その後同様に焼結処理を行なった。他の構成は、実施例と同じである。このようにして形成した実施例および比較例にかかる固体高分子電解質膜電極接合体からなる燃料電池による発電の実験を行った。その結果を図5に示す。図5に示す結果から明らかなように本発明の実施例にかかる燃料電池では、比較例にかかるものに比して発生電圧に関し、 $500\text{ mA}/\text{cm}^2$ において約25mV程度高くなることが判明した。このことは、燃料電池の発電効率が約60%から62%に向上することを意味するものである。単一の固体高分子電解質膜電極接合体からなる燃料電池構成におけるこの実験結果によれば、多数の積層構造から成る燃料電池においては発電効率の向上は顕著なものとなる。

【0019】なお、本例では、カソード電極側の触媒層を触媒密度が異なる2層によって構成したが、さらに多くの密度が異なる層を積層して構成することもできる。この場合、電解質膜側の触媒密度が高くなるように積層する。また、本例では、アノード電極は単一の均一な触媒密度を有する触媒層によって形成したが、かならずしもこのようにする必要はなく、カソード電極と同様に複数の触媒密度の異なる層を積層して構成することもできる。さらに、本例では、触媒密度の異なる層をそれぞれ積層することによって、触媒層を構成したが、触媒密度勾配が電解質膜側から拡散層側に向かって減少するよう\*

【図1】



\*な構成であれば単一の層であってもよい。さらに、触媒層の製造において、上記のような触媒勾配が得られる手法であれば、スプレー、ブラシ塗布によらず薄い10～100μm程度の薄い層を形成するために、公知の任意の手段を用いることができる。

## 【0020】

【発明の効果】上記したように、本発明では、固体高分子電解質膜燃料電池において、簡単な構成でしかも製造コストを増大させることなく、発電効率の向上を図ることができる。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の1実施例にかかる固体高分子型燃料電池の電極接合体の概略断面図、

【図2】図1の燃料電池の各層の積層状態を示す断面図

【図3】カソード側触媒層の組成を示すグラフ、

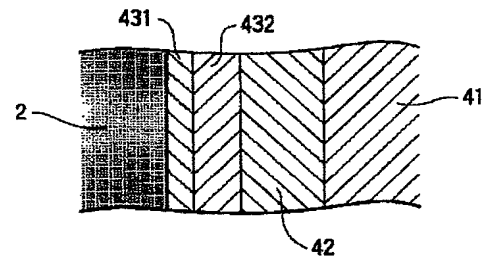
【図4】イオン伝導体を構成するPTFEの構造の一例を示す図、

【図5】燃料電池の特性を示すための電圧と電流密度との関係を示すグラフである。

## 【符号の説明】

- 1 燃料電池
- 2 固体高分子電解質膜
- 3 アノード電極
- 4 カソード電極
- 43、43 触媒層

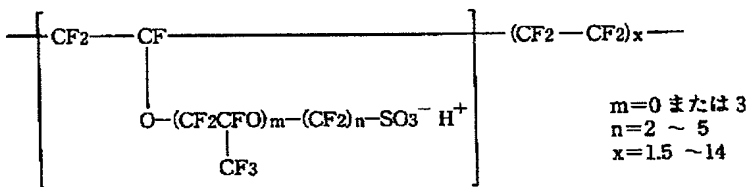
【図2】



【圖 3】

|                              | 第1触媒層 | 第2触媒層 |
|------------------------------|-------|-------|
| Pt/C (%)                     | 40    | 20    |
| Pt (mg/cm <sup>2</sup> )     | 0.2   | 0.2   |
| C (mg/cm <sup>2</sup> )      | 0.3   | 0.8   |
| PTFE (mg/cm <sup>2</sup> )   | 0.2   | 0.5   |
| Nafion (mg/cm <sup>2</sup> ) | 0.2   | 0.4   |
| 厚み (μm)                      | 10    | 20    |

【図 4】



【図 5】

